

# Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N/GaN 에피층의 비정상적인 광발광과 Persistent Photoconductivity 현상

정상조<sup>†</sup> · 전용기\*

전북대학교 반도체물성연구소

\*호원대학교 교양과

## Anomalous Photoluminescence and Persistent Photoconductivity of Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N/GaN Epilayers

S. J. Chung<sup>†</sup> and Y.-K. Jun\*

Semiconductor Physics Research Center, Chonbuk National University, Chonju 561-756, Korea

\*Department of liberal Art and Science, Howon University, Kunsan 573-718, Korea

(2003년 8월 25일 받음, 2003년 10월 2일 최종수정본 받음)

**Abstract** We have investigated Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N/GaN epilayers (x = 0.08, 0.15) grown by metal organic vapor phase epitaxy on sapphire with photoluminescence(PL), and persistent photoconductivity(PPC) experiments. An anomalous S-shaped shift behavior of temperature dependencies of PL peak energy is observed for the x = 0.15 sample. In PPC measurement, showed that the dark current recovery time of Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N epilayers mainly depends on the Al content. These behaviors are usually attributed to the presence of carrier localization states. All these phenomena are explained based on the alloy compositional fluctuations in the Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N epilayers. The photocurrent quenching observed in PPC measurements for Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N epilayers less than 0.2 μm thickness indicates that the presence of metastable state in the bandgap of GaN layer, and that the excess holes in the valence band recombine with free electrons.

**Key words** Persistent photoconductivity, Alloy potential fluctuation, Photocurrent quenching

### 1. 서 론

삼원 질화물 반도체인 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N는 띠 간격이 3.39 eV(x = 0)에서 6.19 eV(x = 1)까지 변화하기 때문에 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N층을 도입한 발광다이오드(light-emitting diodes: LEDs), 레이저 다이오드(laser diodes: LDs), 그리고 visible-blind UV 탐지기와 같은 소자들의 응용뿐만 아니라 질화물 반도체를 이용한 대부분의 전기소자에는 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N의 사용이 거의 필수적이라 할 만큼 다양하고 광범위한 응용이 이루어지고 있다. 최근 full-color 형광 표시소자의 형광물질을 여기 시키는 역할로서 자외선 LED가 주목 받고 있기 때문에 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N을 활성층으로 하는 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N/GaN 다중양자우물구조에 대한 연구 역시 활발히 이루어지고 있으며, 이는 백색광원 연구에도 큰 주목을 받고 있다.<sup>1-7)</sup> 이 같은 물질의 좋은 특성을 소자에 응용하려면 우선 이 물질에 대한 물리적인 특성을 이해하는 것이 가장 중요하다. 그러나 많은 노력에도 불구하고 고품질의 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 박막을 얻기 위한 성장기술, Al 조성제어 기술, Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N/GaN double hetero-

structure에서 격자상수 및 열팽창계수 불일치로 인해 발생하는 crack문제,<sup>8)</sup> 그리고, 에너지 띠 간격 내에 존재하는 깊은 준위들과 관련된 물리적 성질들은 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 물질의 여러 가지 적용에 커다란 문제점으로 나타나고 있다. 최근 들어 MOCVD를 이용한 성장 기술들은 많이 개선되어 가고는 있으나, Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N에 대한 광학적 특성 연구는 아주 미흡한 실정이다. 따라서 본 연구에서는 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N/GaN 박막의 광학적 특성을 이해하고자 PL과 PPC 실험을 실시하였다. Al이 상대적으로 많이 들어간 시료에 대한 온도 의존성 PL을 측정한 결과 온도에 따라 peak 에너지가 감소하다가 다시 증가 한 후 또 감소하는 S 형태의 비정상적인 현상이 나타났다. PPC 실험에서는 광을 차단 한 후에 성분에 따라 암전류로 다시 회복되는 시간이 다르게 나타날 뿐만 아니라 두께 의존성에 따라 비정상적인 PPC 현상이 나타났다. 따라서 본 논문에서는 PL과 PPC에서 나타난 이러한 비정상적인 현상들을 분석하고, 또한 이러한 비정상적인 결과들이 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 층에 형성된 alloy potential fluctuation에 의한 localized states와 관련 있는지에 대하여 논의 하고자 한다.

<sup>†</sup>E-Mail : chungsj40@hanmail.net

## 2. 실험 방법

본 연구에서 사용된  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$  박막은 MOCVD 방법을 이용하여 c-plane  $\text{Al}_2\text{O}_3$  기판 위에 성장한 것이다. 박막 성장 전에  $1150^\circ\text{C}$  수소분위기 속에서 열적으로 표면 클리닝을 실시하고,  $530^\circ\text{C}$  온도로 25 nm 핵층과  $1100^\circ\text{C}$  온도에서  $2\ \mu\text{m}$ 의 GaN 에피층을 성장시킨 후 연속해서 그 위에  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  박막 층을  $1100^\circ\text{C}$ 에서  $0.2\sim 1\ \mu\text{m}$ 의 두께로 성장하였다.

성장된  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$  박막의 실온 특성을 조사하기 위해 PL와 PPC를 측정하였다. PL 측정은 여기광으로  $18\ \text{mW cm}^{-2}$ 의 power density를 갖는 325 nm 파장의 He-Cd 레이저를 사용하였다. PPC 측정은 1000 W 텅스텐 할로겐 램프와 Shimadzu AQV50 spectrometer를 사용하여 3.5~3.7 eV 사이의 광 에너지를 시료에 조사하였다. 측정시간은 광 조사에 의한 rising curve나 광 차단에 의한 curve가 안정된 값에 이를 때까지 충분한 시간간격을 두고 측정하였다. 측정 전에 실질적인 암전류를 찾기 위해 바이어스 전압을 인가한 상태에서 48시간 이상 dark 상태로 유지하여 안정시켰다.

## 3. 결과 및 고찰

Fig. 1과 2는  $\text{Al}_{0.08}\text{Ga}_{0.92}\text{N}/\text{GaN}$ 와  $\text{Al}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{N}/\text{GaN}$  epilayer에 대하여 측정된 온도 의존성 PL 스펙트럼이다. 이들에 대한 PL 피크 에너지 위치만을 Fig. 3에 나타내었다. 일반적으로 반도체의 온도 의존성 PL 실험에서 피

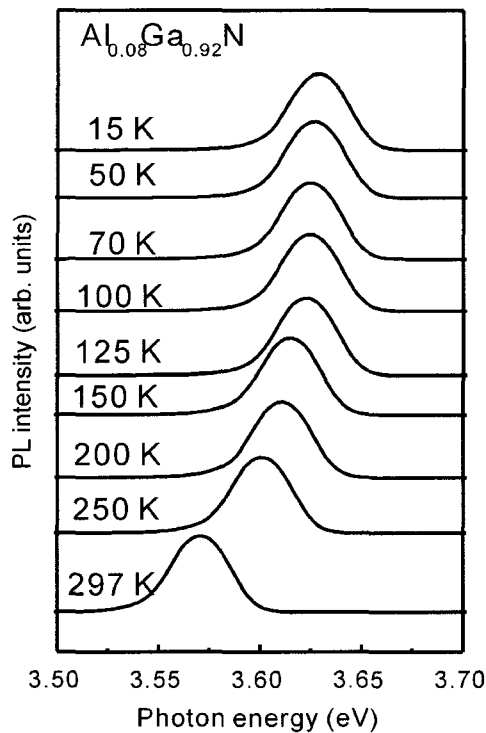


Fig. 1. Temperature dependence of a representative  $\text{Al}_{0.08}\text{Ga}_{0.92}\text{N}$  PL spectra.

크 에너지의 변화는 Varshni's equation<sup>9)</sup>  $E_g(T) = E_g(0) - \alpha T^2/(\beta + T)$ 을 만족한다. 여기에서  $E_g(T)$ 는 주어진 온도에서 띠허격 전이 에너지이며,  $\alpha$ 와  $\beta$ 는 Varshni thermal coefficients이다. Fig. 3에서 보여주듯이  $x = 0.08$ 인 시료에 대한 PL 특성은 온도증가에 따라 피크 에너지가 감소형태가 어느 정도 이식을 만족하는 것처럼 보여준다. 그러나,  $x = 0.15$ 인 시료에서는 처음에는 피크 에너지가

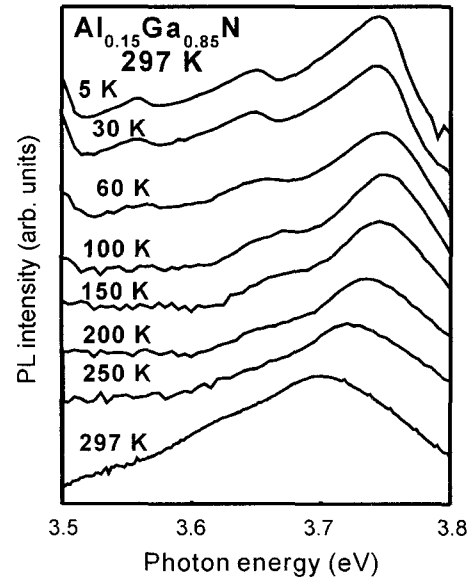


Fig. 2. Temperature dependence of a representative  $\text{Al}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{N}$  PL spectra.

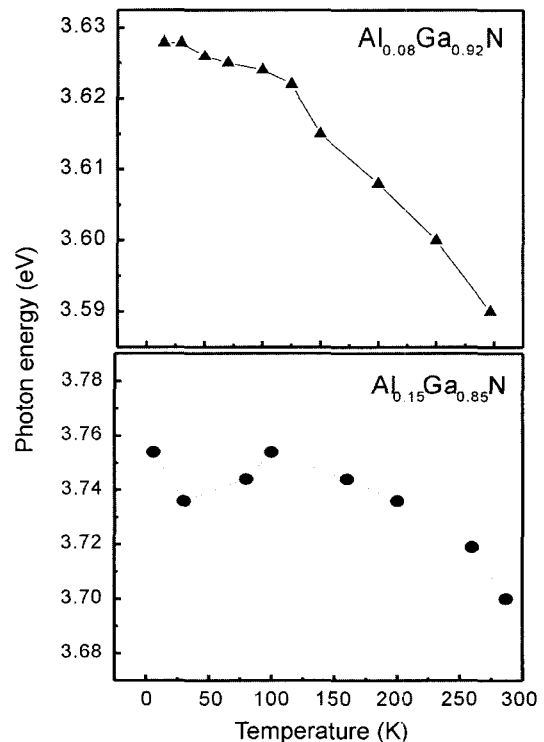


Fig. 3. Temperature dependent PL spectra of  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  epilayers with various Al compositions.

감소했다가 증가하고 다시 감소하는 S 자형의 비정상적인 현상이 나타났다. 이러한 현상은 이미 GaInP<sub>2</sub>, (AlAs)<sub>m</sub>(GaAs)<sub>n</sub> superlattice 등에서 보고 된 바 있으며,<sup>11-13</sup> 질화물반도체 중에는 In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N epilayer나 In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N/GaN 다중 양자우물 구조에서 뚜렷하게 나타나며 이를 alloy potential fluctuation 효과로 설명하고 있다.<sup>14,15</sup> 그러나, 열역학적 계산에 의하면<sup>16</sup> Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N는 In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 이나 InAlN 합금에 비해 unstable mixing region을 가지지 못하기 때문에 phase separation 이 없을 것으로 예상된다. 그럼에도 불구하고 최근에 일부 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 시료에서도 Al 성분이 증가함에 따라 Sokes shift 가 증가하고, 온도의존성 PL 피크들이 S 자형으로 뚜렷하게 변화하는 비정상적인 특성들에 대한 보고가 나오고 있다. 이들 보고들은 주로 time-resolved PL(TRPL), PL excitation(PLE) 등의 실험결과 들로서, 모두 InGaN에서 나타난 현상과 유사하게 설명하고 있으며 주로 alloy potential fluctuation에 의한 band tail state 효과로 분석하고 있다.<sup>17,18</sup> 따라서 우리시료에서 나타난 비정상적인 온도의존성 PL 현상은 alloy potential fluctuations효과에 의한 현상으로 생각된다.

Fig. 4는 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 층의 두께가 0.5 μm 이상인 시료에 대하여 실온에서 측정된 PPC 인데 지금까지 보고되고 있는 PPC 현상과 아주 유사하다.<sup>19</sup> 그런데 특이한 현상은 조사되는 광을 차단한 후에 암전류 상태로 회복되는 현상이 Al 성분에 따라 다르게 나타나는 점이다. 즉, 상대적으로 Al 성분이 많이 들어간 Al<sub>0.15</sub>Ga<sub>0.85</sub>N 시료가 적게 들어간 Al<sub>0.08</sub>Ga<sub>0.92</sub>N 시료보다 암전류로 다시 회복되는율이 매우 느리다. 이것은 에너지 띠 간격에 해당하는 광을 조사하게 되면 광 여기된 캐리어들이 conduction에 기여했다가 광을 제거한 뒤에는 암전류 상태로 곧바로 회복되지 못하고 alloy potential fluctuation에 의해 전도대와 가전자대의 tails에 위치한 localized states에 capture된 캐리어들이 전도에 기여하기 때문인 것으로 생각된다. 따라서 상대적으로 Al 성분이 증가할수록 alloy potential fluctuation현상이 증가하기 때문에 회복되는 시간이 느리게 되는 것이다. 따라서 온도의존성 PL에서 S 형태의 피크 에너지 변화와 PPC 실험에서 decay time의 성분 의존성 등은 alloy potential fluctuation 효과가 분명하다.

Fig. 5 상대적으로 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 층의 두께가 0.2 μm 이하인 얇은 시료에 대한 PPC 스펙트라이다. Figure에서 보여주듯이 빛을 계속 조사 시키는데도 불구하고 어느 시간이 지난 후에는 광전류가 감소하는 photocurrent quenching 현상이 일어났으며, 이 상태에서 빛을 제거했을 때는 광전류가 감소하여 negative photocurrent가 흐르다가 다시 암전류 위치로 다시 회복되는 비정상적인 PPC 현상을 나타냈다. 이 같은 현상은 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 층의 두께가 0.2 μm 이하 정도로 얇아도 GaN층의 두께가 3 μm 이상 되는 두꺼운 시료나, GaN층의 두께가 2 μm 이하의 얇은 시료라 할지라도 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 층의 두께가 0.5 μm 이

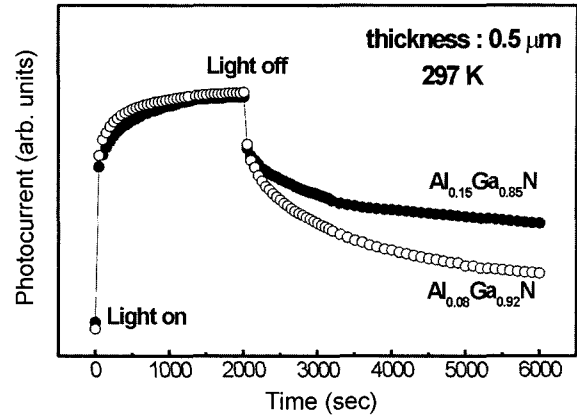


Fig. 4. The PPC spectra for Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N epilayers(thickness: 0.5 μm): taken by illumination with the corresponding bandgap energy at 297 K.

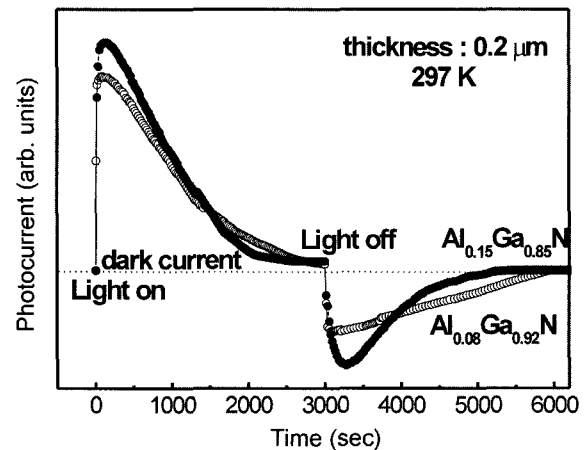


Fig. 5. The PPC spectra for Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N epilayers(thickness: 0.2 μm) taken by illumination with the corresponding bandgap energy at 297 K.

상 되는 두꺼운 시료에서는 나타나지 않았다. 따라서 이 같은 현상은 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 층의 효과 라기보다는 GaN층의 영향으로 두께 의존성을 가지고 있는 것으로 보인다.<sup>20</sup> 또한 Fig. 5에서 흥미로운 점은 dark 이하로 떨어졌다가 다시 회복되는 과정이 Al 성분에 의존함을 볼 수 있다. 광을 제거 한 후 dark로 회복되는 과정이 Al 성분이 상대적으로 많은 시료는 빠른 회복되지만, Al 성분이 작은 시료에서는 회복되는 율이 매우 느리다. 이것은 Al 성분이 증가함에 따라 alloy potential fluctuation 효과 때문에 빠르게 dark로 회복되는 것을 촉진하는 것으로 생각된다. 따라서 온도 의존성 PL에서 peak들이 S 형태로 변화하는 점과 PPC 현상에서 암전류로 다시 회복되는 과정이 성분 의존성을 보이는 현상들은 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N epilayer에 존재하는 compositional fluctuation에 의한 localized state 현상으로 설명 되어진다.

Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N epilayer의 두께가 얇은 시료에서 관측된 photocurrent quenching과 negative photocurrent의 비정상적인 PPC 현상이 일어나는 mechanism은 다음과 같이

설명 할 수 있다. 시료에 조사되는 빛에 의해 GaN층에서 생성되는 자유전자와 자유정공들이 재결합 한 후 남아도는 자유정공이 광전류에 기여하는 자유전자와 재결합 함으로써 전체적으로 캐리어를 감소시키게 되는 결과라 생각된다. 광을 제거 한 후의 비정상적인 PPC 현상은 오랜 시간 광에 의해 생성된 광여기 된 전자들이 준안정적 상태로 넘어가 있기 때문에 남아도는 정공들이 암전류에 기여하는 자유전자들과 재결합하기 때문이다.

#### 4. 결 론

MOCVD를 이용하여 성장 된  $Al_xGa_{1-x}N/GaN(x=0.08, 0.15)$  박막의 특성을 이해하고자 PL과 PPC 실험을 실시한 결과, Al 성분이 상대적으로 많이 들어 간 시료의 온도 의존성 PL 특성은 피크들이 온도에 따라 S자형으로 변화하는 비정상적인 성질이 나타났다. PPC 측정에서는  $Al_xGa_{1-x}N$ 층의 두께와 Al 성분 의존성을 보여주었다. Al 성분이 상대적으로 큰 시료에서는 광을 제거 한 후에 암전류로 다시 회복되는 시간이 매우 느리게 나타났다. 또한  $Al_xGa_{1-x}N$ 층의 두께가  $0.2 \mu m$  이하인 상대적으로 얇은 시료에서는 빛을 계속 조사 시키는데도 불구하고 광전류가 감소하는 photocurrent quenching과 광단속 후에는 광전류가 급격히 감소하다가 다시 암전류 상태로 회복되는 비정상적인 PPC현상을 보였으며, 이때 다시 암전류로 회복되는 시간도 Al 성분이 상대적으로 많이 들어간 시료가 빠르게 회복되었다. 온도변화에 따른 PL peak들의 비정상적인 변화와 PPC에서 광 차단 후 암전류로 회복되는 시간이 다르게 나타나는 현상들은 Al 성분이 증가함에 따라 alloy potential fluctuation의 영향이 크게 작용하기 때문으로 보인다. 두께가 얇은 시료에서 나타난 PPC의 비정상적인 현상은 metastable 성질로서 시료에 조사되는 빛에 의해 생성되는 자유전자와 자유정공이 재결합하고 남아도는 자유정공이 광전류에 기여하는 전도대의 자유전자와 재결합 함으로써 전체적으로 캐리어를 감소시키게 되는 결과로 분석되었다.

#### 감사의 글

본 연구는 2002학년도 호원대학교 교내연구비 지원으로 수행되었으며, 이에 감사 드립니다.

#### 참 고 문 헌

1. S. Nakamura, M. Senoh, and T. Mukai, Jpn. J. Appl. Phys. **30**, L1708 (1991).
2. I. Akasaki, H. Amano, Y. Koide, K. Hiramatsu, and N. Sawaki, J. Cryst. Growth **98**, 209 (1989).
3. S. Nakamura, T. Mukai, and M. Senoh, Appl. Phys. Lett. **64**, 1687 (1994).
4. S. Nakamura, M. Senoh, S. Nagahama, N. Iwasa, T. Yamada, T. H. Kiyoku, Y. Sugimoto, T. Kozaki, H. Umemoto, M. Sano, and K. Chocho. Appl. Phys. Lett. **72**, 1687 (1998) .
5. T. Mukai, H. Narimatsu, and S. Nakamura, Jpn. J. Appl. Phys. **37**, L479 (1998).
6. M. Khan, J. N. Kusnia, D. T. Olson, G. M. Van Hove, M. Blasingane, and L. F. Reitz, Appl. Phys. Lett. **60**, 2917 (1992).
7. D. Walker, X. Zhang, P. Kung, A. Saxler, S. Javadpour, J. Xu, and M. Razeghi, Appl. Phys. Lett. **68**, 2100 (1996) .
8. K. Ito, K. Hiramatsu, H. Amano, and I. Akasaki, J. Cryst. Growth **104**, 533 (1989).
9. Y. P. Varshni, Physica. **34**, 149 (1967) .
10. F. A. J. M. Driessen, G. J. Bauhuis, S. M. Olsthoorn and L. J. Giling, Phys. Rev. B **48**, 7889(1993).
11. K. Yamashita, T. Kita, H. Nakayama and T. Nishino, Rev. B **55**, 4411 (1997).
12. T. Yamamoto, M. Kasu, S. Noda and A. Sasaki, J. Appl. Phys. **68**, 5318 (1990).
13. A. Chomette, B. Deveaud, A. Regreny and G. Bastard, Phys. Rev. Lett. **57**, 1464 (1986).
14. H. W. Shim, R. J. Choi, S. M. Jeong, Le Van Vinh, C.-H. Hong, E.-K. Suh, H. J. Lee, Y.-W. Kim, and Y. G. Hwang, Appl. Phys. Lett. **81**, 3552 (2002).
15. Y.-H. Cho, G. H. Gainer, A. J. Fischer, J. J. Song, S. Keller, U. K. Mishra, and S. P. DenBaars, Appl. Phys. Lett. **73**, 1370 (1998).
16. T. Matsuoka, MRS Internet J. Nitride Semicond. Res. **1**, 11 (1996).
17. Y. H. Cho, G. H. Gainer, J. B. Lam, J. J. Song, W. Yang, and W. Jhe, Phys. Rev. **B61**, 7203 (2000) .
18. H. S. Kim, R. Mair, J. Lin, and H. Jiang, J. Korean, Phys. Soc. **37**, 391 (2000).
19. H. M. Chen, Y. F. Chen, M. C. Lee, and M. S. Feng, Phys. Rev. **B56**, 6942 (1997).
20. S. J. Chung, M. S. Jeong, O. H. Cha, C.-H. Hong, E. -K. Suh, H. J. Lee, Y. S. Kim, and B. H. Kim, Appl. Phys. Lett. **76**, 1021 (2000).